

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 03-215375

(43)Date of publication of application : 20.09.1991

(51)Int.Cl. C04B 38/06

(21)Application number : 02-011581 (71)Applicant : IBIDEN CO LTD

(22)Date of filing : 19.01.1990 (72)Inventor : OHASHI YOSHIMI

(54) PRODUCTION OF POROUS SILICON CARBIDE HAVING LOW DENSITY

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a low density porous SiC material having high porosity and excellent mechanical strength by compounding SiC powder to a carbonaceous substance, sintering a formed article of the mixture in a non-oxidizing atmosphere and heating the sintered product in an oxidizing atmosphere, thereby burning the carbonaceous substance and forming voids in the sintered material.

CONSTITUTION: The objective porous material can be produced by compounding 100 pts.wt. of SiC powder having an average particle diameter of preferably $\leq 200\mu\text{m}$ with preferably 50-100 pts.wt. of a carbonaceous substance, adding a molding binder (preferably PVA, etc.) to the mixture, forming the obtained mixture, baking the formed article in a non-oxidizing atmosphere preferably at 1800-2000° C and heating the obtained sintered material in an oxidizing atmosphere to burn and eliminate the carbonaceous substance in the sintered material. The heating temperature is preferably 600-800° C. Since voids are formed at the parts occupied by the carbonaceous substance while leaving the SiC skeleton of the sintered material, the objective low density porous SiC material having a porosity of 70-80% and containing a number of minute voids can be surely produced.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's

T2

⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

平3-215375

⑤ Int. Cl.⁵
C 04 B 38/06

識別記号 庁内整理番号
B 7202-4G

④ 公開 平成3年(1991)9月20日

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全4頁)

⑬ 発明の名称 低密度炭化珪素多孔質体の製造方法

⑭ 特 願 平2-11581

⑮ 出 願 平2(1990)1月19日

⑯ 発 明 者 大 橋 義 美 岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1-1 イビデン株式会社大垣北工場内

⑰ 出 願 人 イビデン株式会社 岐阜県大垣市神田町2丁目1番地

⑱ 代 理 人 弁理士 恩田 博宣 外1名

明 細 書

1. 発明の名称

低密度炭化珪素多孔質体の製造方法

2. 特許請求の範囲

1 炭化珪素粉末に炭素質物質を配合してなる原料組成物から成形体を成形し、これを非酸化性雰囲気下にて焼成して炭化珪素粉末を焼結させることにより、炭素質物質が分散含有された炭化珪素焼結体を形成し、その後、その焼結体を酸化性雰囲気下にて加熱することにより焼結体中の炭素質物質を燃焼して消失させ、焼結体中に気孔を形成することを特徴とする低密度炭化珪素多孔質体の製造方法。

2 前記原料組成物は、炭化珪素粉末100重量部に対して炭素質物質50～200重量部を配合したものであることを特徴とする請求項1に記載の低密度炭化珪素多孔質体の製造方法。

3 前記炭素質物質は、その平均粒径が炭化珪素粉末の平均粒径の1/10～1/5の粒状物質であることを特徴とする請求項1又は2に記載の

低密度炭化珪素多孔質体の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は高気孔率を有する低密度炭化珪素多孔質体の製造方法に関する。

[従来の技術及び発明が解決しようとする課題]

昨今、炭化珪素多孔質体は、例えば、その中に金属、樹脂、潤滑剤等の各種物質を含浸させて、その物性に特徴を付与した新規複合材料を開発するための骨材、ガス浄化用の触媒担体、あるいは酸やアルカリ等の腐蝕性の強い溶液を濾過するためのフィルターとして、その用途が広く開拓されつつある。特に、炭化珪素多孔質体を担体として利用する場合には、高い気孔率を有し担持効率に優れる低密度の多孔質体が一般に要求される。

従来、炭化珪素多孔質体の製造方法としては、炭化珪素粉末に有機樹脂バインダー等を加えて成形した後、炭化珪素の再結晶温度以上の高温で加熱焼成することにより炭化珪素多孔質体を形成する方法が知られている。しかし、この方法では

気孔率が最大でも40%程度で、嵩密度も2.0 g/cm³程度と比較的高い多孔質体しか得られないという問題があった。

一方、特開昭58-122016号公報においては、高分子発泡体材料に炭化珪素素地泥漿を浸し、該高分子発泡体材料を熱処理により消失せしめて炭化珪素素地スケルトン構造体を形成後、これを焼結させて低密度炭化珪素多孔質体を製造する方法が開示されている。この方法では、気孔径の大きい多孔質体とする場合には気孔率を80~90%と高くすることができる反面、炭化珪素粒子間の結合が弱く、多孔質体の機械的強度が極めて低いという問題があった。また、発泡材料が消失するまでに長大な時間を要し、生産性が低いという問題があった。

本発明は上記事情に鑑みなされたものであり、その目的は、高気孔率を有すると共に機械的強度にも優れた炭化珪素多孔質体を簡便かつ確実に製造することのできる低密度炭化珪素多孔質体の製造方法を提供することにある。

結によって得られる多孔質体において所望の気孔率を実現するために任意に選定される。但し、平均粒径が200 μ mを超える場合、得られた多孔質体の機械的強度を著しく低下させるため、一般には顆粒も含めて200 μ m以下のものを使用することが望ましい。

前記炭素質物質としては、ファーネスブラック、サーマルブラック、コンタクトブラック、ランプブラック等に代表される粉末状のカーボンブラックや、コークス粉末が使用される。前記炭化珪素粉末が焼結され、炭素質物質が消失されるまでの間、成形体の形を崩さないようにする必要があるため、炭素質物質として液状のものを単独で使用することは不適当である。

炭素質物質の平均粒径は、前記炭化珪素粉末の平均粒径の1/10~1/5の範囲とすることが好ましい。この平均粒径が前記1/10未満では、炭化珪素粉末の粒径を選定することにより所望の気孔率を有する多孔質体を得ることが困難になり、平均粒径が前記1/5を超えると、炭化珪素粉末

〔課題を解決するための手段及び作用〕

上記課題を解決するために本発明においては、炭化珪素粉末に炭素質物質を配合してなる原料組成物から成形体を成形し、これを非酸化性雰囲気下にて焼成して炭化珪素粉末を焼結させることにより、炭素質物質が分散含有された炭化珪素焼結体を形成し、その後、その焼結体を酸化性雰囲気下にて加熱することにより焼結体中の炭素質物質を燃焼して消失させ、焼結体中に気孔を形成している。

この方法では、炭化珪素粒子を互いに完全に焼結させた後、焼結粒子間に介在される炭素質物質を燃焼させ、その消失部位を気孔としているため、焼結体の強度が確保され、しかも炭素質物質の配合割合を適宜設定することにより、焼結体の気孔率を任意に設定することができる。

本発明について更に詳細に説明すると、前記炭化珪素粉末としては、 α 型又は β 型の炭化珪素を微細粒子状態又は顆粒状態にて使用することが望ましい。使用する炭化珪素粉末の平均粒径は、焼

の焼結が不十分となって多孔質体の機械的強度が著しく低下する。

炭素質物質の炭化珪素粉末に対する配合割合は、炭化珪素粉末100重量部に対して炭素質物質50~200重量部の範囲が好適であり、更に望ましくは50~100重量部の範囲である。

この配合割合が50重量部未満では、炭化珪素粉末間の粒成長のために得られる多孔質体の気孔率が低くなる。また、高気孔率の焼結体を得るためには、炭素質物質を50重量部以上配合し、炭化珪素粉末の粒成長を適度に抑制することが必要である。一方、前記配合割合が200重量部を超えると、焼成時に成形体が崩壊してしまい、焼結体を得ることができなくなる。炭素質物質の配合割合を100~200重量部とする範囲においては、当該炭素質物質を消失させた後の多孔質体の機械的強度を低下させる傾向にあるが、再度焼成することによって強度の向上を図ることも可能である。

炭化珪素粉末及び炭素質物質の混合によって原

料組成物を得る場合、成形用バインダーを添加することが望ましい。

成形用バインダーとしては、ポリエチレングリコール(PEG)、ポリビニルアルコール(PVA)、フェノール樹脂、メチルセルロース(MC)等の有機樹脂バインダーの他、アルミナゾル、シリカゾル等が使用される。この成形用バインダーの配合割合は一般に、炭化珪素粉末及び炭素質物質の合計100重量部に対し、1~10重量部の範囲が好適である。この配合割合が1重量部未満では、成形体の強度が不十分となり、10重量部を超えると、バインダーを除去する際に成形体にクラックが発生し易くなる。

上記原料組成物から成形された成形体は非酸化性雰囲気下にて焼成されて炭化珪素粉末のみが焼結され、炭素質物質を含有した炭化珪素焼結体が得られる。

非酸化性雰囲気下にて焼成するのは、焼成時の熱によって炭素質物質が燃焼し消失するのを防止するためである。この時の焼成温度は1800~

2000℃の範囲が好ましい。焼成温度が1800℃未満では炭化珪素粉末の焼結が不十分となって、多孔質体の強度が低下し、一方、2000℃を超えると炭化珪素粉末の粒成長が進行して多孔質体の気孔率が低下する。

その後、前記焼結体を酸化性雰囲気下にて加熱することにより焼結体中の炭素質物質及び成形用バインダー等に由来する残留炭素を燃焼して消失させる。この時の加熱温度は600~800℃の範囲が好適である。この加熱温度が600℃未満では炭素質物質を十分に燃焼させることができず、一方、800℃を超えると炭化珪素の結晶粒が酸化され、強度が劣化するので好ましくない。

このように、前記焼結体の炭化珪素骨格はそのまま残された状態で、炭素質物質が占めていた部分には気孔が形成されるため、多数の微細気孔を有すると共に、気孔率にして70~80%の低密度炭化珪素多孔質体が確実に形成される。

[実施例1及び2並びに比較例1~3]

(実施例1)

スプレードライ製法によって得た平均粒径が100μmの炭化珪素顆粒10gに、平均粒径が20μmのコークス粉末10gを配合すると共に、ポリエチレングリコール0.2g及びアセトン30gを加え、メノウ乳鉢にて十分に湿式混合して原料組成物を得た。この原料組成物をカーボン製円筒成型型(内径40mm)に充填し、一軸プレス機を使用して面圧150~200kgf/cm²にて加圧成形することにより、円板状の成形体(φ40mm×5mm)を形成した。

この成形体を焼成炉を使用してアルゴン雰囲気下、昇温速度5℃/min.にて加熱を開始し、1900℃にて4時間焼成した。その後、この焼結体を酸化炉に移し、昇温速度5℃/min.にて加熱を開始し、800℃にて1時間加熱することにより炭化珪素多孔質体を得た。

この多孔質体について高密度、気孔率、角棒(3mm×4mm×3.6mm)による三点曲げ強度を測定した。その結果を表-1に示す。

(実施例2)

平均粒径が0.3μmの炭化珪素粉末10gに、平均粒径が500Åのアセチレンブラック10gを配合すると共に、ポリエチレングリコール0.2g及びアセトン30gを加え、メノウ乳鉢にて十分に湿式混合して原料組成物を得た。

以下、前記実施例1と同様にして炭化珪素多孔質体を作成し、高密度、気孔率、角棒(3mm×4mm×3.6mm)による三点曲げ強度を測定した。その結果を表-1に示す。

(比較例1)

スプレードライ製法によって得た平均粒径が100μmの炭化珪素顆粒10gに、平均粒径が20μmのコークス粉末1gを配合すると共に、ポリエチレングリコール0.2g及びアセトン30gを加え、メノウ乳鉢にて十分に湿式混合して原料組成物を得た。

以下、前記実施例1と同様にして炭化珪素多孔質体を作成し、高密度、気孔率、角棒(3mm×4mm×3.6mm)による三点曲げ強度を測定した。その結果を表-1に示す。

(比較例2)

スプレードライ製法によって得た平均粒径が $10.0\mu\text{m}$ の炭化珪素顆粒 10g に、平均粒径が $1\mu\text{m}$ のコークス粉末 10g を配合すると共に、ポリエチレングリコール 0.2g 及びアセトン 30g を加え、メノウ乳鉢にて十分に湿式混合して原料組成物を得た。

以下、前記実施例1と同様にして炭化珪素多孔質体を作成しようとしたが、酸化炉にて加熱処理した後に焼結体が崩壊してしまい、炭化珪素多孔質体は得られなかった。

(比較例3)

平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ の炭化珪素粉末 10g に、平均粒径が $1\mu\text{m}$ のコークス粉末 10g を配合すると共に、ポリエチレングリコール 0.2g 及びアセトン 30g を加え、メノウ乳鉢にて十分に湿式混合して原料組成物を得た。

以下、前記実施例1と同様にして炭化珪素多孔質体を作成しようとしたが、酸化炉にて加熱処理した後に焼結体が崩壊してしまい、炭化珪素多孔

質体は得られなかった。

表-1

実施例 及び 比較例	嵩密度 (g/cm^3)	気孔率 (%)	三点曲げ 強度 (kgf/mm^2)
実施例1	0.75	77	10
実施例2	0.72	78	8
比較例1	1.47	54	14
比較例2	多孔質体得られず		
比較例3	多孔質体得られず		

表-1からわかるように、原料炭化珪素顆粒の平均粒径に対して粒径が $1/5$ のコークスを使用すると共に両者の配合比を1対1とした実施例1、及び原料炭化珪素粉末の平均粒径に対して粒径が約 0.17 倍のアセチレンブラックを使用すると共に両者の配合比を1対1とした実施例2においては、気孔率が $77\sim 78\%$ と極めて高く、しかも、比較的強度に優れた低密度炭化珪素多孔質体を確実に得ることができた。

これに対し、原料炭化珪素顆粒に対してコークスをその 10 分の 1 しか配合していない比較例1においては、高気孔率の多孔質体を得ることができず、また、原料炭化珪素顆粒の平均粒径に対して粒径が $1/100$ のコークスを使用した比較例2、及び原料炭化珪素粉末の平均粒径に対して粒径が約 3.3 倍のコークスを使用した比較例3においては、いずれも製造途中で崩壊してしまい多孔質体を形成することができなかった。

[発明の効果]

以上詳述したように本発明によれば、高気孔率

を有すると共に機械的強度にも優れた低密度炭化珪素多孔質体を簡便かつ確実に製造することのできるという優れた効果を奏する。

特許出願人 イビデン 株式会社

代理人 弁理士 恩田博宣(ほか1名)